

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-331770

(43)Date of publication of application : 30.11.2000

(51)Int.Cl.

H01T 13/39  
 C22F 1/14  
 H01T 13/20  
 H01T 21/02  
 // C22F 1/00

(21)Application number : 11-138635

(71)Applicant : NGK SPARK PLUG CO LTD

(22)Date of filing : 19.05.1999

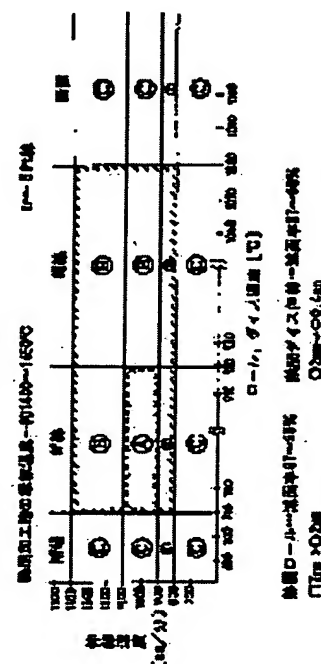
(72)Inventor : MATSUTANI WATARU

## (54) MANUFACTURE OF SPARK PLUG AND DISCHARGE TIP

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To surely ensure ignitability as well as a long service life by suppressing production of internal cracks of a discharge tip in a spark plug.

**SOLUTION:** An iridium ingot is subjected to hot grooved roll process with plural stages and a hot dice wire drawing process with plural stages to form a wire rod. If the temperature of the roll and the dice is within the range of 710–1,080° C and a wire drawing speed is within the range of 800–1,400 mm/ minute, internal cracks exceeding 0.03 mm is not produced. If the temperature of the roll and the dice and the wire drawing speed are within the range of 710–920° C and 900–1,100 mm/minute respectively, no internal crack is produced. A spark plug having a discharge tip manufactured by cutting this wire rod and attached to its center electrode is excellent in durability.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the  
 examiner's decision of rejection or application  
 converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of  
 rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision  
 of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-331770

(P2000-331770A)

(43) 公開日 平成12年11月30日 (2000. 11. 30)

(51) IntCl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームト* (参考)
H 0 1 T 13/39		H 0 1 T 13/39	5 G 0 5 9
C 2 2 F 1/14		C 2 2 F 1/14	
H 0 1 T 13/20		H 0 1 T 13/20	E
21/02		21/02	
// C 2 2 F 1/00	6 2 5	C 2 2 F 1/00	6 2 5
審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 8 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願平11-138635

(22) 出願日 平成11年5月19日 (1999. 5. 19)

(71) 出願人 000004547

日本特殊陶業株式会社

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号

(72) 発明者 松谷 渉

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日

本特殊陶業株式会社内

(74) 代理人 100082500

弁理士 足立 勉

Fターム (参考) 5G059 AA01 AA04 CC01 DD11 DD15

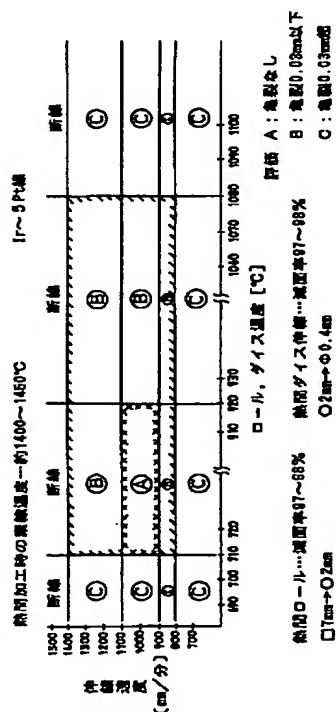
EE11 EE15

(54) 【発明の名称】 スパークプラグ及び放電チップの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 スパークプラグにおいて、放電チップの内部亀裂の発生を抑止し、着火性の確保と長寿命化の両立を図る。

【解決手段】 イリジウム合金のインゴットに、複数段の熱間溝ロール加工と複数段の熱間ダイス伸線加工を施して線材とする。ロール及びダイス温度が710～1080℃、伸線速度が800～1400mm/分の範囲内であると、0.03mmを超える内部亀裂は発生しない。特に、ロール及びダイス温度が710～920℃、伸線速度が900～1100mm/分の範囲内であると、内部亀裂は皆無である。この線材を切断して製造した放電チップを中心電極に取付けたスパークプラグは、耐久性に優れている。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 中心電極と、該中心電極の外側に設けられた絶縁碍子と、前記絶縁碍子の外側に設けられた主体金具と、前記中心電極の先端部との間に火花放電ギャップを隔てて対向する対向部を有する接地電極とを備え、前記先端部及び前記対向部の少なくともいずれか一方にイリジウムを主成分とする放電チップを有するスパークプラグであって、

前記放電チップは、添加元素の含有率が 35wt% 以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工に使用するロール温度と該熱間溝ロール加工の後に実施される熱間伸線加工に使用するダイス温度がともに 710～1080℃とすることによって熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して得られるものであることを特徴とするスパークプラグ。

【請求項 2】 中心電極と、該中心電極の外側に設けられた絶縁碍子と、前記絶縁碍子の外側に設けられた主体金具と、前記中心電極の先端部との間に火花放電ギャップを隔てて対向する対向部を有する接地電極とを備え、前記先端部及び前記対向部の少なくともいずれか一方にイリジウムを主成分とする放電チップを有するスパークプラグであって、

前記放電チップは、添加元素の含有率が 35wt% 以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工時の伸線速度と該熱間溝ロール加工の後に実施される熱間伸線加工時の伸線速度がともに 800～1400mm/分とすることによって熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して得られるものであることを特徴とするスパークプラグ。

【請求項 3】 請求項 1 または 2 記載のスパークプラグにおいて、

前記熱間溝ロール加工時のロール温度及び前記熱間伸線加工時のダイス温度が、ともに 710～1080℃であり、

前記熱間溝ロール加工及び熱間伸線加工時の伸線速度が、ともに 800～1400mm/分であることを特徴とするスパークプラグ。

【請求項 4】 中心電極と、該中心電極の外側に設けられた絶縁碍子と、前記絶縁碍子の外側に設けられた主体金具と、前記中心電極の先端部との間に火花放電ギャップを隔てて対向する対向部を有する接地電極とを備え、前記先端部及び前記対向部の少なくともいずれか一方にイリジウムを主成分とする放電チップを有するスパークプラグであって、

前記放電チップは、添加元素の含有率が 35wt% 以下で、内部亀裂の全長が 0.03mm 以下であることを特徴とするスパークプラグ。

【請求項 5】 イリジウムを主成分として添加元素の含有率が 35wt% 以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工と、該熱間溝ロール加工

の後に熱間伸線加工とが含まれる熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して放電チップを製造する放電チップの製造方法であって、

前記熱間溝ロール加工時のロール温度及び前記熱間伸線加工時のダイス温度が、ともに 710～1080℃であることを特徴とする放電チップの製造方法。

【請求項 6】 イリジウムを主成分として添加元素の含有率が 35wt% 以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工と、該熱間溝ロール加工の後に熱間伸線加工とが含まれる熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して放電チップを製造する放電チップの製造方法であって、

前記熱間溝ロール加工及び熱間伸線加工時の伸線速度が、ともに 800～1400mm/分であることを特徴とする放電チップの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、スパークプラグ用放電チップの技術分野に属する。

## 【0002】

【従来の技術】 内燃機関においては、例えばガソリンエンジンのように燃焼室内の混合気に点火するためにスパークプラグを用いるものがある。そのスパークプラグは、例えば図 1、2 に示される構造とされている。

【0003】 図 1 に示されるスパークプラグ 10 は、例えば陶器製の絶縁碍子 12 の軸孔 13 の一方の端側に端子電極 14 を、他方の端側に中心電極 17 を挿通し、端子電極 14 と中心電極 17 とを導電性のガラスシール材 15 及び抵抗体 16 を介して導通させている。また、絶縁碍子 12 には主体金具 18 が外嵌されており、その環状端面 19 からは腕状の接地電極 20 が延出され、接地電極 20 と中心電極 17 の間に火花ギャップ 21 が形成されている。そして、図 2 に示されるように、中心電極 17 の先端には放電チップ 22 が、例えば全周溶接にて取付けられ、接地電極 20 にも、放電チップ 22 に対面する位置に放電チップ 23 が取付けられている。このスパークプラグ 10 では、接地電極 20 と中心電極 17 の間に高電圧を印加することによって放電チップ 22、23 間で放電させ、その電弧にて混合気に着火する。なお、スパークプラグの細部の形状等は、例えばメーカーによって多少は異なるのが普通であるが、基本的な構造はほぼ図 1、2 に示される通りである。

【0004】 こうしたスパークプラグが装着される内燃機関、例えば自動車のガソリンエンジンでは、排気中の有害物質の低減（排気特性の向上）と低燃費を目的として、希薄燃焼が広く採用されている。ところが、混合気が希薄であると、放電によって発生した火炎が電極（特に中心電極）によって冷却されて消滅することがあった。このような着火性の低下を防止するために、電極の熱容量の低下すなわち小径化が求められていた。

【0005】一方、着火性の問題とは別にスパークプラグの長寿命化も求められていた。具体的には、放電チップには、放電に伴う高温によって表面から成分が揮発する火花消耗が避けられず、この消耗が大きくなれば火花ギャップが適切ではなくなって正常な放電すなわち良好な着火が得られなくなる。こうなると、スパークプラグを交換する等の処置が必要になる。しかし、近年ではエンジンの構造も複雑化して、スパークプラグの交換作業は簡単ではなく、自動車自体の寿命、例えば10年間程度は交換しなくてもよいスパークプラグ、すなわち長寿命のスパークプラグが求められていた。

【0006】このように、スパークプラグの寿命は放電チップの消耗度によって決まると言っても過言ではないが、上述の希薄燃焼における着火性を良好にするために、電極の小径化を図ろうとすると耐火花消耗性が低下してしまい、長寿命化が難しかった。

【0007】そこで、従来放電チップとして用いられていた白金（融点1770℃）よりも融点が高いイリジウム（融点2410℃）またはイリジウム合金を採用することで、放電チップの小径化（希薄燃焼時の着火性の確保）と耐火花消耗性（長寿命化）の両立が図られていた（例えば特開平10-32076号公報）。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、イリジウム合金に、特開平10-32076号公報に開示される熱間加工を施すと、伸線時における亀裂を十分に抑えることができず、特に外観だけでは判断できない内部亀裂が発生する可能性があり、特にイリジウムに白金を添加した合金においてその傾向が顕著であった。普通、この内部亀裂は、断面を観察しただけでは見つけ難く、断面の組織エッチングを行ってかろうじて発見できる大きさである。こうした内部亀裂が存在する材料を放電チップとして用いると、スパークプラグの使用に伴う冷熱作用によって亀裂が進展して、スパークプラグの寿命が大幅に低下してしまう場合があった。これは、溶接面に垂直に亀裂が進展して放電チップが裂けることによって分断されるとエンジンの燃焼による受熱量が多くなるために放電チップ自体の温度が上昇して消耗が多くなるためであると考えられる。なかには、放電チップが欠けてしまう場合もあった。

【0009】本発明は、イリジウム合金の放電チップを有するスパークプラグにおいて、放電チップの内部での亀裂の発生を抑止することを目的とし、ひいてはスパークプラグの着火性の確保と長寿命化の両立を図るものである。

【0010】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するための請求項1記載のスパークプラグは、中心電極と、該中心電極の外側に設けられた絶縁碍子と、前記絶縁碍子の外側に設けられた主体金具と、前記中心電極の先端部と

の間に火花放電ギャップを隔てて対向する対向部を有する接地電極とを備え、前記先端部及び前記対向部の少なくともいずれか一方にイリジウムを主成分とする放電チップを有するスパークプラグであって、前記放電チップは、添加元素の含有率が35wt%以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工に使用するロール温度と該熱間溝ロール加工の後に実施される熱間伸線加工に使用するダイス温度がともに710～1080℃とすることによって熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して得られるものであることを特徴とする。

【0011】請求項2記載のスパークプラグは、中心電極と、該中心電極の外側に設けられた絶縁碍子と、前記絶縁碍子の外側に設けられた主体金具と、前記中心電極の先端部との間に火花放電ギャップを隔てて対向する対向部を有する接地電極とを備え、前記先端部及び前記対向部の少なくともいずれか一方にイリジウムを主成分とする放電チップを有するスパークプラグであって、前記放電チップは、添加元素の含有率が35wt%以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工時の伸線速度と該熱間溝ロール加工の後に実施される熱間伸線加工時の伸線速度がともに800～1400mm/分とすることによって熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して得られるものであることを特徴とする。

【0012】請求項3記載のスパークプラグは、請求項1または2記載のスパークプラグにおいて、前記熱間溝ロール加工時のロール温度及び前記熱間伸線加工時のダイス温度が、ともに710～1080℃であり、前記熱間溝ロール加工及び熱間伸線加工時の伸線速度が、ともに800～1400mm/分であることを特徴とする。

【0013】請求項4記載のスパークプラグは、中心電極と、該中心電極の外側に設けられた絶縁碍子と、前記絶縁碍子の外側に設けられた主体金具と、前記中心電極の先端部との間に火花放電ギャップを隔てて対向する対向部を有する接地電極とを備え、前記先端部及び前記対向部の少なくともいずれか一方にイリジウムを主成分とする放電チップを有するスパークプラグであって、前記放電チップは、添加元素の含有率が35wt%以下で、内部亀裂の全長が0.03mm以下であることを特徴とする。

【0014】請求項5記載の放電チップの製造方法は、イリジウムを主成分として添加元素の含有率が35wt%以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工と、該熱間溝ロール加工の後に熱間伸線加工とが含まれる熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して放電チップを製造する放電チップの製造方法であって、前記熱間溝ロール加工時のロール温度及び前記熱間伸線加工時のダイス温度が、ともに710～1080℃であることを特徴とする。

【0015】請求項6記載の放電チップの製造方法は、イリジウムを主成分として添加元素の含有率が35wt%以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工と、該熱間溝ロール加工の後に熱間伸線加工とが含まれる熱間加工を施して線材とし、該線材を所定長さに切断して放電チップを製造する放電チップの製造方法であって、前記熱間溝ロール加工及び熱間伸線加工時の伸線速度が、ともに800～1400mm/分であることを特徴とする。

【0016】

【発明の実施の形態】請求項1～3記載の放電チップを有するスパークプラグにおいては、その放電チップはイリジウムを主成分として添加元素の含有率が35wt%以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工を施した後、熱間伸線加工を施して線材とし、その線材を所定長さに切断して得られたものである。また、請求項5及び6記載の放電チップの製造方法においては、イリジウムを主成分として添加元素の含有率が35wt%以下のイリジウム合金のインゴットから開始して、熱間溝ロール加工を施した後、熱間伸線加工を施して線材とし、その線材を所定長さに切断して放電チップにする。なお、インゴットは、熱間加工に先立って、ロール温度及びダイス温度以上の適宜の温度、例えば1300℃以上に加熱される。

【0017】この熱間加工に際して、請求項1または3記載のように、熱間溝ロール加工時のロール温度及び熱間伸線加工時のダイス温度を、ともに710～1080℃の範囲とすると、内部亀裂の発生を抑止できる。ここでは、ロール温度またはダイス温度が710℃を下回る状態では被加工材が硬すぎて亀裂が発生し、1080℃を上回ると再結晶によって結晶組織が粗大化するために亀裂が発生するものと考えられ、ロール温度及びダイス温度を710～1080℃とすることで亀裂の発生が抑止されると思われる。

【0018】ロール及びダイスは、例えばバーナ等の加熱手段によって加熱することで上述の温度範囲に保つことができる。また、請求項2または3記載のように、熱間溝ロール加工及び熱間伸線加工時の伸線速度を、ともに800～1400mm/分の範囲としても、内部亀裂の発生を抑止できる。

【0019】したがって、請求項3記載のように、熱間溝ロール加工時のロール温度及び熱間伸線加工時のダイス温度を、ともに710～1080℃の範囲とし、熱間溝ロール加工及び熱間伸線加工時の伸線速度を、ともに800～1400mm/分の範囲とすることにより、一層良好に内部亀裂を抑止できる。

【0020】特に、ロール温度及びダイス温度を、ともに710～920℃の範囲とし、熱間溝ロール加工及び熱間伸線加工時の伸線速度を、ともに900～1100mm/分の範囲とすれば、実質的に内部亀裂のない放電

チップを得ることができる。なお、本発明の方法を実施する際の溝ロール加工及び伸線加工時の減面率は97～98%が推奨されるが、この範囲に限定されるわけではなく、例えば実験に基づいて好適な減面率を設定すればよい。

【0021】次に、請求項4記載の放電チップを有するスパークプラグは、その放電チップは、添加元素の含有率が35wt%以下で、内部亀裂の全長が0.03mm以下であることを特徴とする。内部亀裂が皆無であれば理想的だが、全長が0.03mm以下の内部亀裂であれば長期間の使用でも内部亀裂が進展することは少なく、実用上問題が無い。この請求項4に記載のスパークプラグの放電チップは、例えば請求項1または2記載の放電チップでも良いが、最も好適には請求項3記載の放電チップが良い。

【0022】また、イリジウム合金の添加元素として白金、ルテニウム、レニウム、ロジウム、パラジウムのいずれか1種以上を用いることができる。これらの元素を添加することによって例えば耐酸化性を向上させる等、放電チップすなわちスパークプラグの性能の向上や寿命の長期化が可能になる。

【0023】

【実施例】次に、実施例により、発明の実施の形態をより具体的に説明する。白金を5wt%含むイリジウム合金(Ir-5Pt)のインゴット(断面形状は正方形、1辺寸法は7mm)を1400～1450℃に加熱(図8S1)してから、複数段の熱間溝ロール加工を施して短径2mmの正六角形の線材とした(図8S2)。なお、ロール加工の各段毎の減面率は97～98%である。また、各段のロールは、予め目標温度に加熱しておき、加工中もその温度を維持した。

【0024】この熱間ロール加工に続いて、複数段の熱間ダイス伸線加工を施して最終的に断面形状が円形で直径0.4mmの線材とした(図8S3)。なお、伸線加工の各段毎の減面率は97～98%である。また、各段のダイスは、予め目標温度に加熱しておき、加工中もその温度を維持した。そして、室温に放置した後、所定長さに切断することにより放電チップが得られる(図8S4)。

【0025】この熱間加工におけるロール及びダイス温度と伸線速度をさまざまに変更して比較した結果を図3に示す。図3にA、B、Cで示される各線材を切断して放電チップを複数製造し、それぞれの内部亀裂を調べた。また、図4には各放電チップの断面をSEMにて観察した写真(倍率100倍)を示す。Aの線材にて製造した放電チップのいずれにも内部亀裂はなかった。Bの線材にて製造した放電チップには0.03mm以下の内部亀裂を有するものが数%あったが、0.03mmを超える内部亀裂を有するものはなかった。Cの線材にて製造した放電チップには0.03mmを超える内部亀裂を

10

20

30

40

50

有するものが数%あった。

【0026】次に、Aの線材にて製造した放電チップ（実施例A）、Bの線材にて製造した放電チップの内、0.03mm以下の内部亀裂を有するもの（実施例B）及びCの線材にて製造した放電チップの内、0.03mmを超える内部亀裂を有するもの（比較例C）を、それぞれ中心電極に取付けたスパークプラグをガソリンエンジンに装着して、5000rpm×W.O.T.×400Hrsの実機耐久試験を行った。

【0027】その結果を図5、図6及び図7に示す。図5は、比較例Cの実機耐久試験における100Hr後の放電チップ周り及び断面組織の拡大写真、図6は、実施例A、B及び比較例Cの実機耐久試験における200Hr後の放電チップ周り及び断面組織の拡大写真である。また、図7は、耐久時間に対する放電ギャップの増加量をグラフに表したものである。この結果からわかるように、実施例Aの放電チップはまったく問題がなく、また実施例Bの放電チップには亀裂の進展は認められず問題はなかった。しかし、比較例Cの放電チップは、耐久試験開始後200Hr程度で明らかに亀裂の進展によると見られる消耗増大が見られ、280Hr時点で、放電チップの一部が欠落した。この結果から、実施例A、Bの放電チップは耐久性に優れていることが確認できる。すなわち、放電チップに初期的な内部亀裂が存在しない、あるいは初期的な内部亀裂があっても0.03mmを超えていなければ耐久性に優れている。

【0028】図3～図7に示すところから明らかなように、ロール及びダイス温度が710～1080℃、伸線速度が800～1400mm/分の範囲内であると、0.03mmを超える内部亀裂は発生しない。特に、ロール及びダイス温度が710～920℃、伸線速度が900～1100mm/分の範囲内であると、内部亀裂は皆無であり、きわめて良好な結果となった。

【0029】さらに、Ir-10Pt、Ir-10Rh、Ir-20Rh、Ir-13Pt-10Rh、Ir-3Pd、Ir-5Ru、Ir-5Re、Ir-12Re-5Rh、Ir-12Re-10Rh、Ir-22Re-10Rh、Ir-12Ru-5Rh、Ir-12Ru-10Rh、Ir-22Ru-10Rhの各イリジウム合金のインゴットに、ロール及びダイス温度と伸線速度を変えて上述と同様の熱間加工を施したが、ロール及びダイス温度と伸線速度に対応する加工結果は、図3に示されるものと同様であった。

【0030】なお、この実施例は、本発明の実施形態の一例であり、本発明はこのような実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲でさまざまに実施できることは言うまでもない。

【0031】

【発明の効果】請求項1～3記載の放電チップを有するスパークプラグは、その放電チップが内部系列のない、あるいは内部亀裂の小さいものであるため、スパークプラグの着火性の確保と長寿命化の両立が可能になる。

【0032】特に、請求項3記載によれば、一層良好に放電チップの内部亀裂を抑止でき、上述の効果をさらに向上させることができる。請求項5、6記載の放電チップの製造方法によれば、内部亀裂のない、あるいは内部亀裂が小さい放電チップを製造できる。

【0033】さらに、請求項4記載の放電チップを有するスパークプラグは、放電チップに全長が0.03mmを超える内部亀裂が存在しないことから、長期の使用によって内部亀裂が進展して放電チップが欠けることはなく、長寿命を確保できる。また、放電チップ及び中心電極の小径化によって希薄燃焼時の着火性の低下を防止できる。よって、着火性の確保と長寿命化が両立している。

【0034】また、例えば放電チップの耐酸化性を向上させる等の目的で、白金、ルテニウム、レニウム、ロジウム、パラジウムのいずれか1種以上を添加したイリジウム合金の放電チップの製造に適している。

【図面の簡単な説明】

【図1】 スパークプラグの構造の例示図である。

【図2】 図1のスパークプラグの電極付近の拡大図である。

【図3】 実施例の熱間加工におけるロール及びダイスの温度並びに伸線速度と加工結果の対応図である。

【図4】 実施例及び比較例の放電チップの断面の金属組織のSEM写真である。

【図5】 比較例の放電チップに実機耐久試験を行った際の金属組織のSEM写真である。

【図6】 実施例及び比較例の放電チップに実機耐久試験を行った際の金属組織のSEM写真である。

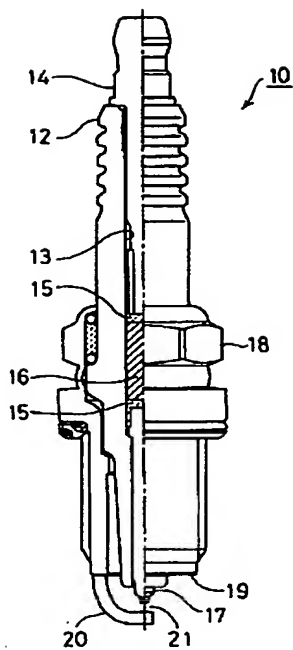
【図7】 実施例及び比較例の放電チップの実機耐久試験における耐久時間に対する放電ギャップの増加量のグラフである。

【図8】 実施例の放電チップ放電チップの加工手順を示すフローチャートである。

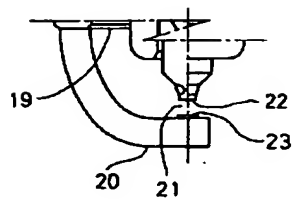
【符号の説明】

- |            |            |          |
|------------|------------|----------|
| 10…スパークプラグ | 12…絶縁碍子    | 13…軸孔    |
| 14…端子電極    | 15…ガラスシール材 | 16…抵抗体   |
| 17…中心電極    | 18…主体金具    | 19…環状端面  |
| 20…接地電極    | 21…火花ギャップ  | 22…放電チップ |
| 23…放電チップ   |            |          |

【図1】



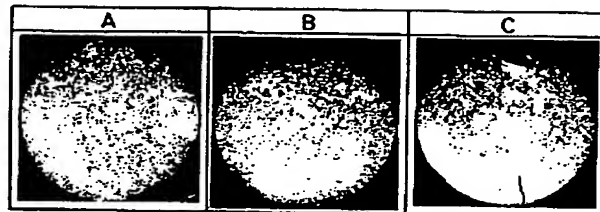
【図2】



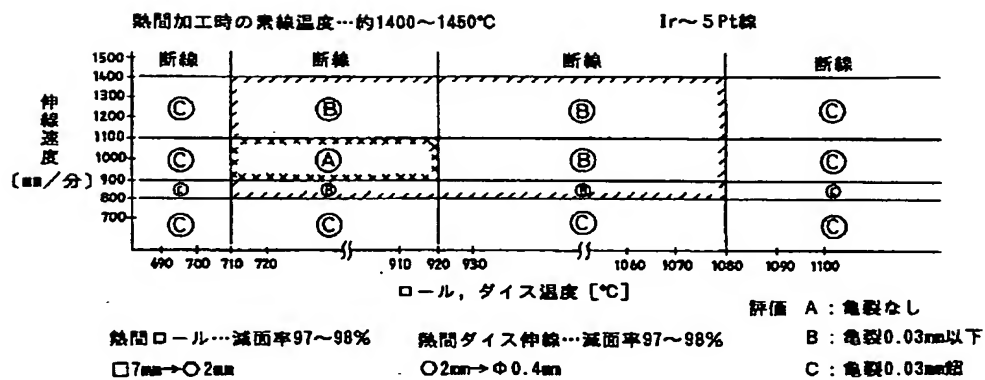
【図4】

チップ断面状態

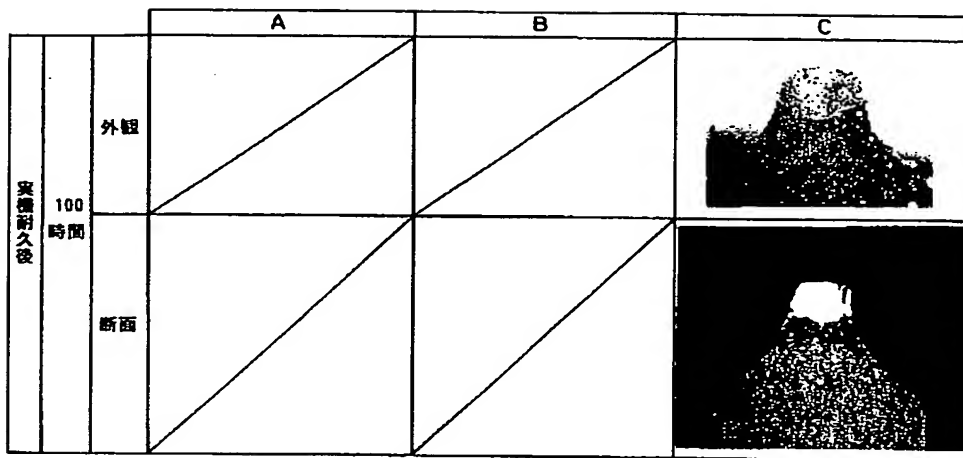
新品時  
チップ断面  
(I<sub>2</sub>チンク処理後)



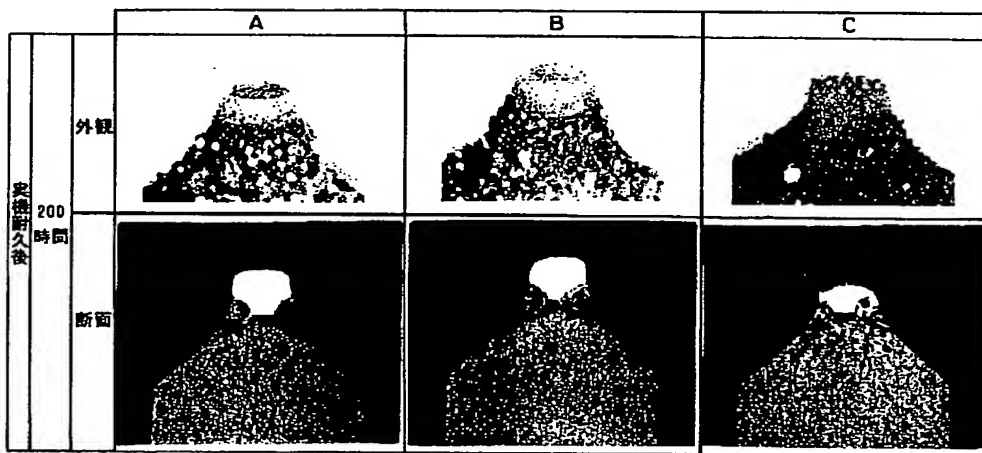
【図3】



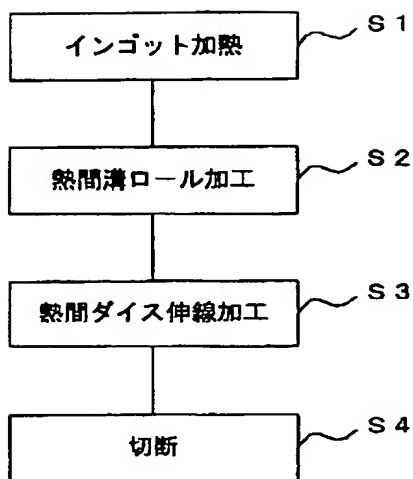
【図5】



【図6】

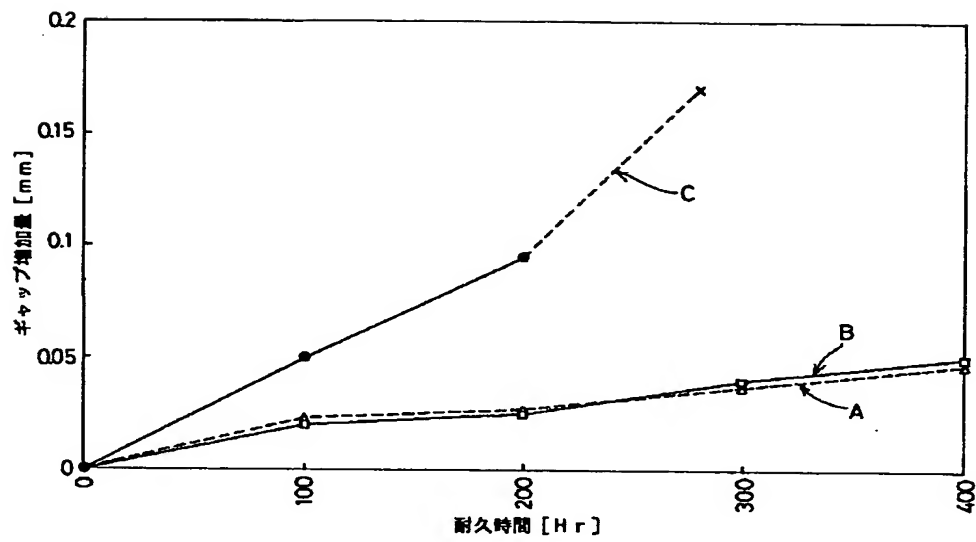


【図8】





【図7】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>

C 2 2 F 1/00

識別記号

6 8 3

6 9 4

F I

C 2 2 F 1/00

テーマコード (参考)

6 8 3

6 9 4 B